

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-017244

(43)Date of publication of application : 17.01.2003

(51)Int.Cl.

H05B 33/04

H05B 33/02

H05B 33/10

H05B 33/14

(21)Application number : 2001-204446

(71)Applicant : SONY CORP

(22)Date of filing : 05.07.2001

(72)Inventor : NADA NAOJI

KITO HIDEYOSHI

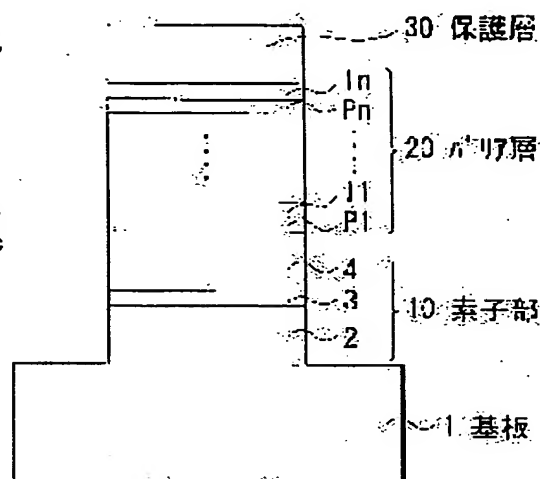
KOBAYASHI MASATO

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND ITS MANUFACTURING METHOD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an electroluminescent element that prevents deterioration by water or oxygen and is capable of improving reliability, and its manufacturing method.

SOLUTION: The element part 10 on the substrate is covered by a barrier layer 20 at its surface. The barrier layer 20 seals the element part 10 and an organic layer P and an inorganic layer I are laminated alternately so as to shut off infiltration of water and oxygen. The inorganic layer I performs the function of mainly preventing transmission of water and oxygen and the organic layer P has sufficient elasticity and performs the function of suppressing stress by being provided between the inorganic layers I so that the inorganic layers I may not contact each other. When the barrier layer 20 is made multi-layered by thinning the thickness of one layer, the occurrence of cracks is prevented and the barrier performance is improved and flexibility for enduring deformation such as bending is provided. These organic layer P and inorganic layer I are formed by the vacuum dry process such as vacuum evaporation.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-17244

(P2003-17244A)

(43) 公開日 平成15年1月17日 (2003.1.17)

(51) Int.Cl.⁷

識別記号

F I

データベース (参考)

H 0 5 B 33/04

H 0 5 B 33/04

3 K 0 0 7

33/02

33/02

33/10

33/10

33/14

33/14

A

審査請求 未請求 請求項の数13 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願2001-204446(P2001-204446)

(22) 出願日 平成13年7月5日 (2001.7.5)

(71) 出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72) 発明者 名田 直司

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ

ー株式会社内

(72) 発明者 鬼頭 英至

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ

ー株式会社内

(74) 代理人 100098785

弁理士 藤島 洋一郎

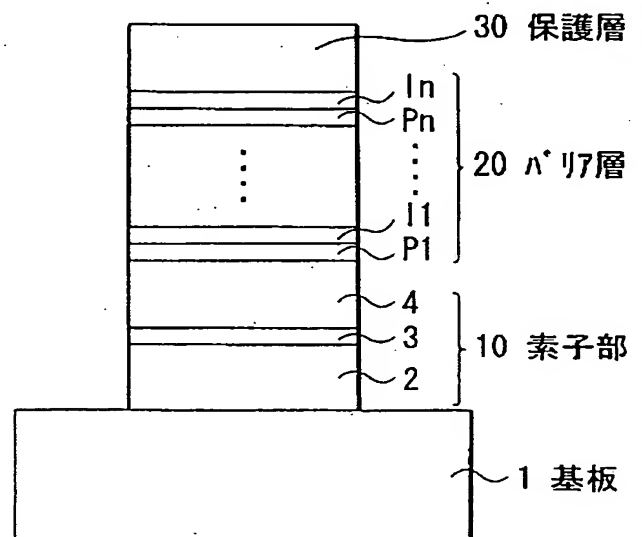
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 水や酸素に対する劣化を防止し、信頼性を高めることが可能な有機電界発光素子およびその製造方法を提供する。

【解決手段】 基板1上の素子部10は、表面がバリア層20に覆われている。バリア層20は、素子部10を封止し、水分や酸素の侵入を遮断するために有機層Pと無機層Iが交互に積層されたものである。無機層Iが主に水分や酸素の透過を防ぐ機能を有し、有機層Pは、弾性に富み、無機層I同士が接しないようにその間に設けられて応力を抑制する機能を有している。バリア層20を、1層の厚みを薄くして多層化させると、クラック発生が防止されてバリア性が向上すると共に曲げなどの変形に耐える可撓性を備えたものとなる。これら有機層P、無機層Iは、真空蒸着等の真空ドライブプロセスにて成膜される。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 基板と、

第1の電極層と第2の電極層との間に有機電界発光層を有し、前記基板の一面側に接する素子本体部と、有機層と無機層とが交互に成膜され積層された構造を有すると共に、前記素子本体部の前記基板と反対側の面に接するバリア層とを備えた有機電界発光素子。

【請求項2】 前記有機層および前記無機層は、真空成膜法により成膜されていることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 前記有機層および前記無機層は、蒸着法、スパッタリング法およびCVD法のいずれかにより成膜されていることを特徴とする請求項2記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 前記バリア層のうち前記素子本体部と接する層が有機層であることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項5】 前記基板は可撓性を有する材料よりなることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項6】 前記基板は高分子材料よりなることを特徴とする請求項5記載の有機電界発光素子。

【請求項7】 基板の一面側に、第1の電極層、有機電界発光層および第2の電極層を順に成膜し、素子本体部を形成する工程と、前記素子本体部の上に、有機層と無機層を交互に真空成膜してバリア層を形成する工程とを含むことを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

【請求項8】 前記有機層と前記無機層とを連続して成膜することを特徴とする請求項7記載の有機電界発光素子の製造方法。

【請求項9】 前記素子本体部の形成工程の少なくとも一部を前記バリア層の形成工程と連続して行なうことを特徴とする請求項8記載の有機電界発光素子の製造方法。

【請求項10】 前記有機層および前記無機層を蒸着法、スパッタリング法およびCVD法のいずれかにより成膜することを特徴とする請求項7記載の有機電界発光素子の製造方法。

【請求項11】 前記バリア層の形成工程において前記素子本体部の直上にまず有機層を成膜することを特徴とする請求項7記載の有機電界発光素子の製造方法。

【請求項12】 前記基板として可撓性を有する基板を用いることを特徴とする請求項7記載の有機電界発光素子の製造方法。

【請求項13】 前記基板に高分子基板を用いることを特徴とする請求項12記載の有機電界発光素子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、極薄型の有機電界

発光 (Electroluminescence; EL) ディスプレイに用いて好適な有機電界発光素子およびその製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、フラットパネルディスプレイとしては液晶ディスプレイが主流であったが、近年、さらなる極薄化・大画面化を達成するものとして、有機ELディスプレイが注目されている。その実用化にあたっては、軽量化、薄型化と共に曲面形状とすることが可能な形状加工性が求められており、高分子フィルムなどの可撓性を有する材料からなる基板を用いることが提案されている (例えば特開平2-251429号公報や特開平6-124785号公報など)。

【0003】 この有機ELディスプレイは、透明基板上に透明導電膜よりなる短冊状の電極層 (陽極) と、金属薄膜よりなり、陽極と直交する短冊状の電極層 (陰極) との間に有機電界発光層を有する素子本体部が多数設けられた構造をしている。また、陽極と陰極とはマトリクス状となっており、選択された電極の間に電圧を印加することにより、所定位置の有機電界発光層を発光させる。このような発光部分は、個々の有機EL素子に対応しており、すなわちディスプレイ上の画素を構成している。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 ところで、有機EL材料は水分や酸素によって容易に、しかも著しく劣化することが知られており、有機ELディスプレイには、そのために輝度が低下するという実用上大きな課題が残されている。従来では、有機ELディスプレイの素子本体部への水分や酸素の侵入を防ぐために、表示面 (透明基板側) の反対側から素子本体部を覆うように、金属の蓋あるいはガラスの蓋を紫外線硬化樹脂などの接着剤で取り付ける方法が採られていた。しかしながら、このような方法では、ディスプレイの薄型化や軽量化には限界があった。また、高分子フィルムを基板とする可撓性を有するディスプレイに対しては、この方法ではその形状自由度を十分に生かすことができない。

【0005】 一方、素子本体部の上に窒化シリコン等の無機薄膜を形成し、更にその上にスピンコーティング法やディップ法により樹脂を塗布することにより、素子本体部を水分や酸素から保護する方法も提案されている (特開2000-223264号公報)。この方法では、樹脂ペーストに含まれる溶媒が有機電界発光層を侵す可能性があるため、まず無機薄膜を形成してから樹脂を積層する。この無機薄膜は、十分なバリア性をもたせるためには緻密かつ十分厚く形成されねばならないが、このため応力の増大などによりクラックが発生しやすくなり、却ってバリア性を低下させることになる。さらに、有機電界発光層はITO (indium tin oxide) 等の透明電極層との密着性があまり高くないので、無機薄膜

の内部応力が高いと、透明電極層から有機電界発光層が剥がれてしまう虞がある。また、樹脂の塗布時に水分が下地となる膜中に侵入したり、形成する膜と下地との界面に水分や酸素が吸着したりする可能性があるため、無機薄膜が薄いあるいは膜質が粗いと、水分や酸素が無機薄膜を透過して有機電界発光層に達し、これを劣化させる虞もあった。このように、従来では、有機EL素子の上をバリア性の高い薄膜により封止して素子の信頼性を向上させることが困難であった。

【0006】本発明はかかる問題点を鑑みてなされたもので、その目的は、水や酸素に対する劣化を防止し、信頼性を高めることが可能な有機電界発光素子およびその製造方法を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明による有機電界発光素子は、基板と、第1の電極層と第2の電極層との間に有機電界発光層を有し、基板の一面側に接する素子本体部と、有機層と無機層とが交互に成膜され積層された構造を有すると共に、素子本体部の基板と反対側の面に接するバリア層とを備えている。このバリア層は、水分および酸素の透過を防止するものである。

【0008】また、本発明による有機電界発光素子の製造方法は、基板の一面側に、第1の電極層、有機電界発光層および第2の電極層を順に成膜し、素子本体部を形成する工程と、素子本体部の上に、有機層と無機層を交互に真空成膜してバリア層を形成する工程とを含むものである。

【0009】本発明による有機電界発光素子およびその製造方法では、バリア層が形成時にその内部に水分や酸素を含有しないものとなり、同時にバリア層が有機層を挟みながら形成されることで、素子の可撓性を損なわずにバリア層内の応力が抑制される。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態について図面を参照して詳細に説明する。

【0011】図1は、本発明の一実施の形態に係る有機EL素子の概略を示す構成図である。この有機EL素子は、基板1の上に素子本体部10が設けられ、更にその表面がバリア層20および保護層30により覆われて構成されている。

【0012】基板1は、透明で可撓性を有する材料から構成されていることが好ましく、ここではポリエチレンテレフタレート（PET；Poly(EthyleneTerephthalate)）が用いられる。その他、ポリカーボネート（PC；PolyCarbonate）、ポリオレフィン（PO；PolyOlefin）、ポリエーテルスルホン（PES；PolyEter Sulphone）を初めとする高分子ポリマー系材料を好適に用いることができ、薄膜ガラスを用いてもよい。

【0013】素子本体部10は、有機EL素子としての機能を有する部分であり、基板1側より透明電極層2、

有機EL層3、金属電極層4が順に積層して構成されている。ここで、透明電極層2は、正孔を有機EL層3に注入するために設けられる短冊状の電極層（陽極）である。透明電極層2としては、基板1の側から光を取り出すために透光性を有する材料で構成されていることが望ましい。そのような材料をしてITOを用いることが好ましく、その他、酸化スズ（ SnO_2 ）、酸化亜鉛（ ZnO ）等が用いられる。

【0014】また、有機EL層3は、透明電極層2の上に形成され、透明電極層2の側から順に、正孔輸送層、発光層および電子輸送層（いずれも図示せず）が積層されたものである。正孔輸送層は、透明電極層2から注入された正孔を発光層まで輸送するためのものであり、その材料としては、例えば、ベンジン、スチリルアミン、トリフェニルアミン、ボルフィリン、トリアゾール、イミダゾール、オキサジアゾール、ポリアリーールアルカン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、オキサゾール、アントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、あるいはこれらの誘導体、または、ポリシラン系化合物、ビニルカルバゾール系化合物、チオフェン系化合物あるいはアニリン系化合物等の複素環式共役系のモノマー、オリゴマーあるいはポリマーを用いることができる。具体的には、例えば、 α -ナフチルフェニルジアミン、ボルフィリン、金属テトラフェニルボルフィリン、金属ナフタロシアニン、4,4,4-トリス（3-メチルフェニルフェニルアミノ）トリフェニルアミン、トリフェニルアミン、N,N,N,N-テトラキス（p-トリル）p-フェニレンジアミン、N,N,N,N-テトラフェニル4,4-ジアミノビフェニル、N-フェニルカルバゾール、4-ジ-p-トリルアミノスチルベン、ポリ（パラフェニレンビニレン）、ポリ（チオフェンビニレン）、ポリ（2,2-チエニルピロール）等が挙げられる。

【0015】発光層は、金属電極層4、透明電極層2における電圧印加時に、それぞれから電子および正孔が注入され、これら電子および正孔が再結合する領域である。この発光層は、発光効率が高い材料、例えば、低分子蛍光色素、蛍光性の高分子、金属錯体等の有機材料から構成されている。そのような材料としては、例えば、アントラセン、ナフタリン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ベリレン、プタジエン、クマリン、アクリジン、スチルベン、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム錯体、ビス（ベンゾキノリノラト）ベリリウム錯体、トリ（ジベンゾイルメチル）フェナントロリンユーロピウム錯体ジトリルビニルビフェニルが挙げられる。

【0016】電子輸送層は、金属電極層4から注入される電子を発光層に輸送するためのものである。電子輸送層の材料としては、例えば、キノリン、ベリレン、ビススチリル、ピラジン、またはこれらの誘導体が挙げられ

る。具体的には、8-ヒドロキシキノリンアルミニウム、アントラセン、ナフタリン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ペリレン、プタジエン、クマリン、アクリジン、スチルベン、またはこれらの誘導体が用いられる。

【0017】この有機EL層3の上に、金属電極層4が設けられている。金属電極層4は、有機EL層3に電子を注入するために設けられる短冊状の電極層（陰極）であり、透明電極層2と直交する方向に形成される。金属電極層4としては、例えば、アルミニウム（Al）、インジウム（In）、マグネシウム（Mg）、銀（Ag）、カルシウム（Ca）、バリウム（Ba）およびリチウム（Li）などが用いられる。なお、これらの金属は単体で用いてもよく、他の金属との合金としてもよい。

【0018】バリア層20は、素子本体部10への水分および酸素の侵入を遮断するために素子本体部10を封止しており、有機層Pと無機層Iとを交互に積層して構成されたものである。本実施の形態では、バリア層20を、素子本体部10側より有機層P1、無機層I1、
20

有機層Pn、無機層Inと、有機層Pから始めてそれぞれn層（ $n \geq 2$ ）積層されたものとする。
【0019】このバリア層20では、無機層Iが主に水分や酸素の透過を防ぐ機能を有し、有機層Pは、一般に弾性に富み、無機層I同士が接しないようにその間に設けられることで各層の界面において応力を抑制する機能を有している。なお、ここで1層目を有機層P1としているのは、このような機能を有する有機層Pが金属電極層4と無機層Iとの間に介在することによって両者の界面に生じる応力もまた低減されるためである。

【0020】また、バリア層20の水分や酸素に対するバリア性は、無機層Iの総厚によって決まる。そこで、本実施の形態では、十分なバリア性が得られるような無機層Iの所定総厚みに対して層数nを適度に多く設定するようにしている。そのため、各層の厚みは相対的に薄くなるので、バリア層20は応力が低減してクラック発生が防止されると共に、曲げなどの変形に耐えうる可撓性を備えたものとなる。このように、バリア層20の厚みと層数nは、バリア性と総厚の関係や、有機層P、無機層Iの材料等を考慮して適宜選択されるが、バリア性
30

向上のためには、バリア層20は1層の厚みを薄くして多層化されることが望ましい。
【0021】このような有機層Pおよび無機層Iは、真空成膜法で成膜されたものである。真空成膜法とは、予め高真空とした容器内で行われる成膜法を指し、これにより有機層P、無機層Iは、層の界面や内部に水分や酸素をほとんど含まないものとなる。真空成膜法としては、例えば、真空蒸着法、スパッタリング法あるいはCVD（Chemical Vapor Deposition）法が用いられる。従来のバリア層では有機膜原料に含まれる溶媒が有機E

L層まで浸透する可能性があったのに対し、これらは水分を含む溶液や溶媒を用いずに成膜を行うドライプロセスであるために、バリア層20は、形成時にその内部に水分を包含することが防止され、バリア性が高いものとなる。

【0022】なお、有機層Pは、真空中の成膜プロセスにより成膜が可能な有機材料で構成され、透水性や吸水性が低いものが好ましい。そのような材料としては、例えば、シクロオレフィンポリマー、ポリエチレン、ポリテトラフルオロエチレン、ナイロン、ポリメチルメタクリレート（PMMA）を用いることができるが、これらに限定されるものではない。なお、同一のバリア層20において、有機層P1、
10

有機層Pnを1種類の材料に限る必要はなく、有機層Pは2種以上としてもよい。更に、有機層Pを2層以上の積層膜で構成することも可能である。例えば、透水率、吸水率が低いシクロオレフィンポリマーの間に吸湿剤として機能するナイロンを設けた積層膜などを用いてもよい。
【0023】無機層Iは、真空中の成膜プロセスにより成膜が可能であると共に、透水性や吸水性が低く、かつ、酸素透過性の低い無機材料で構成されている。そのような材料としては、例えば、窒化シリコン（SiN_x）、酸化シリコン（SiO_x）、酸化アルミニウム（AlO_x）およびアルミニウム等の金属が挙げられるが、これらに限定されるわけではない。

【0024】保護層30は、有機EL素子の外部からの損傷を防止するためのものであり、例えば紫外線硬化樹脂などにより構成される。なお、バリア層20の最外層を無機層Inとした場合、無機層の材料によっては保護層30の役割を兼ねることも可能である。
30

【0025】次に、このような構成を有する有機EL素子の製造方法について説明する。

【0026】まず、素子本体部10を形成する。例えば厚さ188μmのPETからなる帯状の基板1を用意し、その上に以下の各層を順次成膜する。すなわち、例えば、反応性DCスパッタリングにより、ITOからなる厚さ150nmの透明電極層2を成膜する。次いで、透明電極層2の上に、例えば真空蒸着法により有機EL層3として正孔輸送層、発光層および電子輸送層をこの順に成膜する。このとき、例えば、正孔輸送層としては、4,4',4"-tris(3-methylphenylphenylamino)triphenylamine（m-MTDATA）、発光層としては、4,4'-bis[N-(1-naphthyl)-N-phenylamino]biphenyl（α-NPD）、電子輸送層としては、tris(8-hydroxyquinoline)aluminum（Alq₃）を用いてそれぞれを成膜する。この有機EL層3の総厚は、例えば150nmとする。次に、有機EL層3上に、例えば真空蒸着法によりAl-Li合金よりなる厚さ100nmの金属電極層4を形成する。

【0027】次に、バリア層20を形成する。図2は、

本実施の形態において有機EL素子のバリア層20の成膜に用いられる成膜装置の概略を示す構成図である。この成膜装置100は、一方のロールから他方のロールにフィルムを送る間にそのフィルムに加工を施す所謂ロールコーティング法により、フィルム状の基板1の上に成膜を行うものである。

【0028】成膜装置100は、例えば、真空ポンプ（図示せず）に接続された排気バルブ42と、反応ガスを導入するためのガス導入バルブ43が設けられた真空チャンバ41によって、外気を遮断することが可能となっている。真空チャンバ41の内部には、フィルム状の基板1を連続して送り出すための送りロール44、ガイドロール45、および、送り出された基板1を巻き取るための巻取ロール46が設けられ、これらのロール間における基板1の走行経路を形成するためのキャンロール47a~47eが適宜に配置されている。更に、基板1の一面側に対して、その表面をクリーニングするためのプラズマ電極48と、その表面上に薄膜を形成するための蒸着源49Aおよび蒸着源49Bとが設けられている。ここでは、蒸着源49Aが蒸着により有機層Pを成膜し、蒸着源49Bがスパッタにより無機層Iを成膜するものとし、蒸着源49Aには蒸発材料として有機層Pの材料が收容され、蒸着源49Bには無機層Iの材料に応じたターゲットが備えられる。有機層Pの材料としては、例えばシクロオレフィンポリマーが用いられ、無機層Iを例えば窒化シリコンとする場合にはSiターゲットが用いられる。なお、形成された薄膜の膜質や厚みを確認するためのモニタを真空チャンバ41内に設けてもよい。

【0029】この成膜装置100では、送りロール44が回転して、これに巻回されている基板1が送り出されると、巻取ロール46が回転し、図のような経路をたどった基板1を巻き取るようになっている。その際、送りロール44と巻取ロール46の回転速度を調節することで、両者間における基板1の走行速度を制御することができる。また、一旦送りロール44から送り出された基板1は、キャンロール47a~47c、ガイドロール45、キャンロール47d、47eを介して巻取ロール46に巻き取られる。この走行経路において、基板1はその一面側に順次以下の処理が施される。

【0030】まず、プラズマ電極48が発生させるプラズマ放電によって、表面洗浄が行われ、次いで、ガイドロール45の蒸着源49Aと対向する位置に達すると、ここで、蒸着源49Aによる真空蒸着によって有機層Pが成膜される。更に、ガイドロール45の蒸着源49Bと対向する位置に達すると、ここで、蒸着源49Bによるスパッタリングによって無機層Iが成膜される。こうして基板1の上には有機層Pと無機層Iが順に成膜されるが、これを送りロール44と巻取ロール46を回転させながら行なうことによって基板1の上に有機層P、無

機層Iを連続的に成膜することができる。

【0031】次に、成膜の手順を説明する。初めに、素子本体部10が形成された帯状の基板1を成膜装置100の送りロール44に巻回し、基板1が上述の経路に沿って巻取ロール46まで走行するように調整する。更に、真空チャンバ41を密閉したうえで、その内部を排気バルブ42を通じて真空引きしておく。

【0032】続いて、プラズマ電極48にプラズマ放電を発生させ、蒸着源49Aおよび蒸着源49Bにおいてそれぞれ蒸着を開始させておき、この状態で送りロール44と巻取ロール46を回転させ、送りロール44に巻回されている基板1を送り出すと同時に巻取ロール46で巻き取るようにする。その際、蒸着源49Aおよび蒸着源49Bへの投入電力は（蒸着速度を決めるため）、基板1の走行速度との間で適宜調整するようにする。

【0033】これにより、基板1は、キャンロール47a、47bの間を走行するときに表面をプラズマ洗浄され、キャンロール47cを介してガイドロール45の蒸着源49Aと対向する位置に達すると、表面に真空蒸着により有機層Pが成膜される。更に、ガイドロール45の蒸着源49Bと対向する位置に達すると、有機層Pの上に、スパッタリングにより無機層Iが成膜される。その後、基板1は、キャンロール47d、47eを介して巻取ロール46に巻き取られるが、收容される基板1には、一面側に素子本体部10、有機層P、無機層Iが順に成膜されている。

【0034】その際、素子本体部10と無機層Iとの間に設けた有機層Pが応力を緩衝し、その影響を防止するようになっている。よって、成膜された基板1では、ロールに巻き取られて曲げられたり張力を受けたりしても、有機EL層3が剥がれたり無機層Iにクラックが生じたりすることが少ない。

【0035】所定長さの基板1について成膜し終えたら、一旦、プラズマ電極48、蒸着源49Aおよび蒸着源49Bを停止させ、送りロール44に基板1を巻き戻す。なお、送りロール44と巻取ロール46を互換できるようにし、巻取り後に取り外した巻取ロール46を送りロール44位置に取り付けるようにしてもよい。次に、プラズマ電極48、蒸着源49Aおよび蒸着源49Bを再び稼働させ、上記の工程と同様にして基板1上に有機層P、無機層Iを成膜する。こうして、有機層Pおよび無機層Iを一度に成膜する工程を繰り返すことで、容易に有機層Pと無機層Iを所望の層数で周期的に積層することができる。

【0036】これにより、素子本体部10の表面に、有機層Pと無機層Iとがそれぞれ2層以上交互に積層されたバリア層20が形成される。ここでは、有機層Pと無機層Iが大気曝露されことなく連続的にドライプロセスにより成膜されることで、これらの膜界面や膜中に水分や酸素が取り込まれる危険性が防止される。

【0037】最後に、例えば、紫外線硬化樹脂をスピンコーティングして、厚さ10 μ mの保護層30をバリア層20の上から覆うように形成する。こうして、有機EL素子が製造される。

【0038】このように、本実施の形態では、素子本体部10の上に設けられるバリア層20を無機層1の間に有機層Pを介するように積層して形成したので、バリア層20内の応力が低減され、無機層1におけるクラックの発生が防止される。また、バリア層20は、薄い層を多く重ねることによって所望の総厚を達成するようにしたので、無機層1の1層あたりの厚みが薄くなることによっても応力が軽減され、クラックが発生し難くなる。よって、無機層1を、クラック発生を防止しつつ所望の総厚まで成膜することが可能となり、バリア層20は十分なバリア性を備えることができる。これにより、有機EL素子は劣化に強く、信頼性の高いものとなる。

【0039】同時に、従来では素子本体部の封止にガラス蓋などを用いていたが、薄膜からなるバリア層20に代えることで、有機EL素子はより薄型化が可能となる。また、有機層Pと無機層1とが多層化されることで、有機EL素子は、基板1の変形に追従できる可撓性を兼ね備えたものとなる。

【0040】更に、バリア層20は有機層P1を第1層としたので、無機層1と素子本体部10の金属電極層4との間に生じる応力も低減されて、無機層1に発生するクラックをより防止することができ、有機EL層3の剥がれ等を防止することも可能となる。

【0041】また更に、有機層Pおよび無機層1を真空蒸着法により同一装置内で連続的に成膜するようにしたので、水分や酸素を膜中や膜界面に含まないバリア層20が形成され、劣化に強い有機EL素子を得ることができると共に、製造工程の簡素化や製造コストの低減を図ることができる。なお、ここでは、基板1として帯状の高分子基板を用いるようにしたので、成膜装置100によるロールコーティングが可能となり、量産性が飛躍的に向上する。

【0042】

【実施例】次に、本発明の実施例について説明する。なお、本実施例では、上記実施の形態と同様の要素については同一の符号を付して対応させながら説明を行なう。

【0043】（実施例1）基板1上の素子本体部10の表面に有機層Pと無機層1を各1層積層させ、バリア層を形成した。用いた成膜装置は、真空蒸着のための蒸着源と、スパッタリングのための蒸着源（ターゲット）を共に1つの容器内に備えた真空成膜用の装置である。

【0044】まず、素子本体部10が形成された基板1を装置内に設置し、その素子本体部10側の表面に、有機層Pとしてシクロオレフィンポリマーを真空蒸着により100nm成膜した。その際には、シクロオレフィンポリマーを粉碎し、これを蒸発材料としてタンタル（T

a）製ポートに入れて抵抗加熱により蒸着を行なった。なお、成膜したシクロオレフィンポリマー層に対してFT-IR測定を行ったところ、成膜前の蒸発材料と構造が同じであることが明らかとなった。これにより、シクロオレフィンポリマーの成膜に蒸着法を用いることが可能であることが確認できた。

【0045】引き続き、シクロオレフィンポリマー膜の上に、無機層1として窒化シリコン膜をスパッタリングにより200nm成膜した。その際の成膜条件は、ターゲットにSiを用い、アルゴンガスと窒素ガスの流量比を88：12として装置内に導入し、ガス圧0.4Pa、RFパワー1.5kWとした。このようにして形成されたバリア層には、窒化シリコン層にクラックの発生は見られなかった。

【0046】また、バリア層を形成した後に、この有機EL素子を40℃、相対湿度90%の雰囲気下で60時間以上放置したが、素子本体部10の劣化は認められなかった。よって、形成されたバリア層がバリア性に優れていることがわかる。

【0047】（実施例2）基板1上の素子本体部10の表面に、バリア層の第1層目として無機層11を窒化シリコンにより成膜した。成膜条件は実施例1と同様であり、厚みは100nmとした。この窒化シリコン層にはクラックが見られなかった。また、成膜後の窒化シリコンの屈折率を波長633nmの光を用いて測定したところ、その値は2.0であり、密度の高い膜が得られたものと考えられる。従って、同様の窒化シリコン層を有機層Pと交互に成膜することで、クラックのないバリア層を形成することができることがわかる。

【0048】（比較例）基板1上の素子本体部10の表面に、バリア層の第1層目として無機層11を窒化シリコンにより成膜した。成膜条件は実施例1と同様であり、厚みは200nmとした。この窒化シリコン層には、クラックの発生が認められた。

【0049】実施例1および比較例より、実施例1では、素子本体部10との間にシクロオレフィンポリマー層が設けられることで窒化シリコン層に生じる応力が抑制されたと考えられる。また、実施例1、実施例2および比較例より、バリア層として第1層目に無機層1を形成する場合、有機層Pを第1層目とする場合に比べてクラックが発生しやすく、その厚みはより薄く設定される必要があることが示唆される。

【0050】以上、実施の形態および実施例を挙げて本発明を説明したが、本発明は上記の実施の形態および実施例に限定されるものではなく、種々変形が可能である。例えば、上記実施の形態では、バリア層20を、素子本体部10側より有機層P1、無機層11、・・・有機層Pn、無機層1nと、有機層Pから始めてそれぞれn層（n \geq 2）積層されたものとしたが、バリア層20の1層目および最外層は有機層Pおよび無機層1のどち

11

らであっても構わないし、有機層 P および無機層 I が回数ではなく、どちらかが 1 層多くともよい。

【0051】また、上記実施の形態では、成膜装置 100 は蒸着源 49A、蒸着源 49B が設けられ、一度のロールコーティングで 2 層形成するものとして説明したが、蒸着源 49 の数や種類は任意に選ぶことが可能である。また、各層の成膜を必ずロールコーティング法によって行なう必要がないことは勿論である。そのような成膜装置の変形としては、例えば、1 つの真空チャンバ 31 に蒸着源 49 を複数設けて、一回のロールコーティングもしくは基板を一巡させる間に多層を形成するようにしてもよい。また、1 つの真空チャンバをいくつかの領域に仕切り、その間に基板 1 を走行させるようにしてもよい。いずれにしても、有機層 P と無機層 I とを大気暴露することなく連続して成膜できる構造であればよい。更に、有機層 P と無機層 I のみならず、素子本体部 10 あるいは保護膜 30 についても蒸着源 49 を設け、成膜装置 100 内でロールコーティングによって形成するようにしてもよい。

【0052】更に、素子本体部の構造は上記実施の形態で示した構造に限らず、発光層に有機化合物を用いた有機 EL 素子として構成可能なものであればよい。

【0053】

【発明の効果】以上説明したように請求項 1 ないし請求項 6 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子によれば、有機層と無機層とが交互に成膜され積層された構造を有すると共に、素子本体部の基板と反対側の面に接するバリア層備えるようにしたので、水分や酸素をほとんど含有せず、クラックの発生が抑制されることで水分や*

12

* 酸素を遮断するのに十分なバリア性を有するバリア層によって素子本体部が保護され、その劣化が防止される。よって、素子の信頼性を向上させることができる。また、無機層の間に有機層を介在させたバリア層は曲げに強く、素子自体を可撓性を備えたものとすることが可能である。更に、バリア層は、従来封止に用いられてきたガラス蓋などに比べてより薄型化が可能となる。

【0054】また、請求項 7 ないし請求項 13 のいずれか 1 項に記載の有機電界発光素子の製造方法によれば、素子本体部の上に、有機層と無機層を交互に真空成膜してバリア層を形成する工程を含むようにしたので、水分や酸素をほとんど含有しないバリア層により素子本体部が封止され、劣化が防止された有機電界発光素子を得ることができる。また、有機層と無機層を連続して成膜することができ、製造工程の簡素化や製造コストの低減を図ることが可能となる。

【図面の簡単な説明】

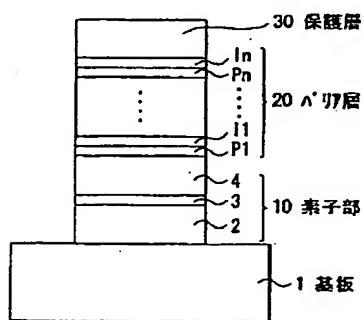
【図 1】本発明の一実施の形態に係る有機 EL 素子の概略図である。

20 【図 2】本発明の一実施の形態に係る成膜装置を側面から見た概略図である。

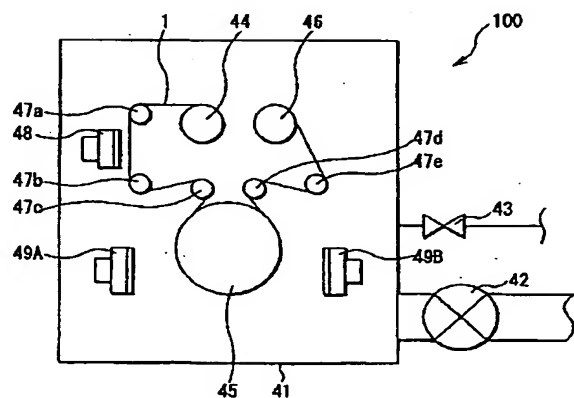
【符号の説明】

1…基板、2…透明電極層、3…有機 EL 層、4…金属電極層、10…素子本体部、20…バリア層、30…保護層、41…真空チャンバ、42…排気バルブ、43…ガス導入バルブ、44…送りロール、45…ガイドロール、46…巻取ロール、47…キャンロール、48…プラズマ電極、49A、49B…蒸着源、100…成膜装置、P…有機層、I…無機層

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

(72)発明者 小林 正人
東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ
ー株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB11 AB13 AB15 AB18 BA07
BB00 CA06 CB01 DA01 DB03
EA01 EA04 EB00 FA01 FA02